

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2005-516059

(P2005-516059A)

(43) 公表日 平成17年6月2日(2005. 6. 2)

(51) Int. Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C07C 211/58	C07C 211/58	2H068
C07D 209/86	C07D 209/86	3K007
C07D 333/76	C07D 333/76	4C204
C07F 7/10	C07F 7/10	4H006
C09K 11/06	C09K 11/06 620	4H049
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 33 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2003-563997 (P2003-563997)
 (86) (22) 出願日 平成14年12月19日 (2002.12.19)
 (85) 翻訳文提出日 平成16年6月17日 (2004. 6. 17)
 (86) 国際出願番号 PCT/DE2002/004758
 (87) 国際公開番号 W02003/064373
 (87) 国際公開日 平成15年8月7日 (2003. 8. 7)
 (31) 優先権主張番号 102 03 328.5
 (32) 優先日 平成14年1月28日 (2002. 1. 28)
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)

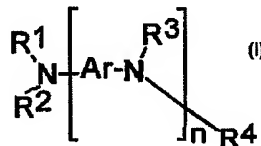
(71) 出願人 504233775
 センシエント イマジング テクノロジイ
 ズ ゲーエムベーハー
 ドイツ国 ウォルヘン 06766, エミ
 ルーフィッシャー-ストラッセ 3, アレ
 アル アー, ヘミーパーク ビッターフェ
 ルド-ウォルフエン
 (74) 代理人 100083714
 弁理士 舟橋 榮子
 (72) 発明者 リヒター, アンドリース, エム
 ドイツ国 プロッスニッツ 06188,
 イム ミューレングルンド 25
 (72) 発明者 リシェウスキー, フォルケル
 ドイツ国 ウォルヘン 06766, セラ
 -ハッセ-ストラッセ 13
 最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 トリアリアルアミン誘導体および有機エレクトロルミネセンスと電子写真デバイスへの使用

(57) 【要約】

本発明は特定の空間充填翼群を含む新規のトリアリアルアミン誘導体、および電子写真およびエレクトロルミネセンスデバイスにおけるホール輸送物質としての使用に関するものである。トリアリアルアミン誘導体において、 $n=1-10$ 、 R^1-R^4 は、任意に置換されたフェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレン、アントラセニル、フルオレニル、トリアリアルメチルアリアル、またはトリアリアルシリルアリアルを示し；Arはビフェニレンまたは置換されたフルオニレン架橋を示し、または $n=1$ ならばArは置換されたビフェニレン、トリフェニレン、またはテトラフェニレン架橋である。

【化1】

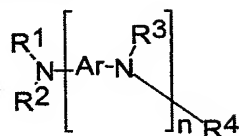


【特許請求の範囲】

【請求項 1】

一般式 1 で表わされる トリアリールアミン誘導体。

【化 1】

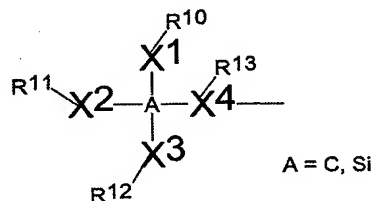


1

10

式中、 n は 1 から 10 までの整数であり； R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は同じかまたは異なり、フェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニル、トリアリールメチルアリール、またはトリアリールシリルアリール、残基の R^1 から R^4 の少なくとも 1 は式 1 で表わされる トリアリールメチルアリールまたはトリアリールシリルアリールであり

【化 2】



4

20

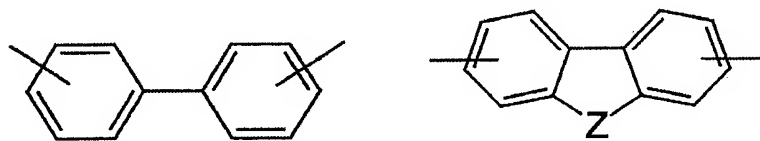
式中、芳香族または複素環芳香族化合物単位 X^1 から X^4 は同じかまたは異なり、フェニル、ナフチル、アントラセニル、フェナントレニル、ピレニル、ビリジルまたはキノリルであり、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} および R^{13} は同じかまたは異なり、H、 C_1 ないし C_6 アルキル、シクロアルキル、 C_2 ないし C_4 アルケニル、 C_1 ないし C_4 アルコキシ、 C_1 ないし C_4 ジアルキルアミノ、ジアリールアミノ、ハロゲン、ヒドロキシ、フェニル、ナフチルまたはビリジルであり、

30

そして R^1 から R^4 はフェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニルであり、1 またはそれ以上の置換基 C_1 ないし C_3 アルキル、 C_1 ないし C_2 アルコキシまたはハロゲンによって置換することができ；

Ar は式 2 または 3 の構造式であり

【化 3】



2

3

40

構造式 Ar は $n > 1$ ならば同じかまたは異なり、そして式 3 中の Z は次の構造式から選択され

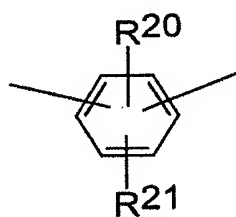
【化 4】



R^5 から R^9 は、同じかまたは異なり、H、 C_1 ないし C_{15} アルキルであり、または R^5 および R^6 または R^7 および R^8 は結合して 5 員環または 6 員環の脂環式または複素環式環を形成し、従ってそれらが結合している 5 員環と共にスピロ環系を形成し、O、N または S は複素環原子である；

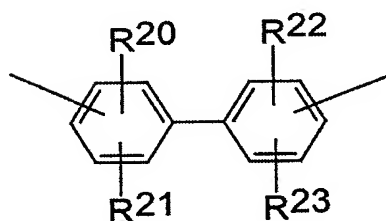
または Ar は式 29、30、31 または 32 の構造式であり

【化 5】



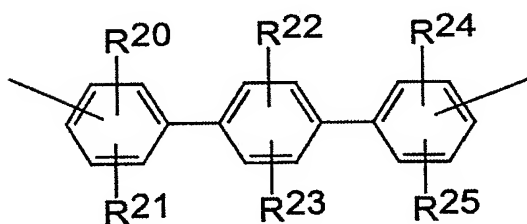
29

20



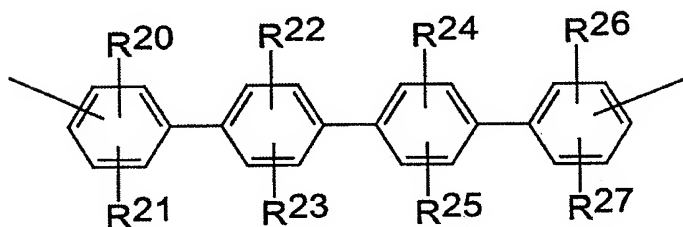
30

30



31

40



32

そして R^{20} から R^{27} は、同じかまたは異なり、H、フェニル、 C_1 ないし C_5 アルキル、または C_1 ないし C_3 アルコキシ、および Ar は任意のフリーの置換位置での隣接し

50

た窒素原子に結合し、

但し、 $n = 1$ または 2 および Ar がビフェニレンまたは式 29 から 32 の群の 1 である場合、残基の R^1 から R^4 の少なくとも 1 はトリアリールシリルアリアル残基または上記式 4 による置換されたトリアリールメチルアリアル単位であり、 R^{10} から R^{12} は上記と同じ意味をもつ。

【請求項 2】

式 1 において、 n は 1 から 4 の整数、好ましくは 1 または 2 である、請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

【請求項 3】

一般式 1 の残基 R^1 から R^4 はフェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フルオレニル、トリアリールメチルアリアルまたはトリアリールシリルアリアルである、請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

10

【請求項 4】

残基 R^5 から R^9 が、同じかまたは異なり、メチルまたはフェニルである、請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

【請求項 5】

残基 R^5 および R^6 が結合している C 原子と共にスピロアルカン環を形成する、請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

【請求項 6】

残基 R^{20} から R^{27} が、同じかまたは異なり、H、メチルまたはフェニルである、請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

20

【請求項 7】

少なくとも 1 のホール輸送層および 1 の発光層を有し、少なくとも 1 のホール輸送層が請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体を含む、有機エレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 8】

ルミネセンス層が請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体を含む、請求項 7 記載の有機エレクトロルミネセンスデバイス。

【請求項 9】

有機エレクトロルミネセンスデバイスにおいてホール輸送物質またはルミネセンス物質として請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体の使用。

30

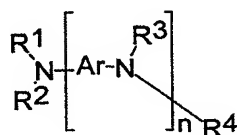
【請求項 10】

電子写真配置においてホール輸送物質として請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体の使用。

【請求項 11】

一般式

【化 6】



1

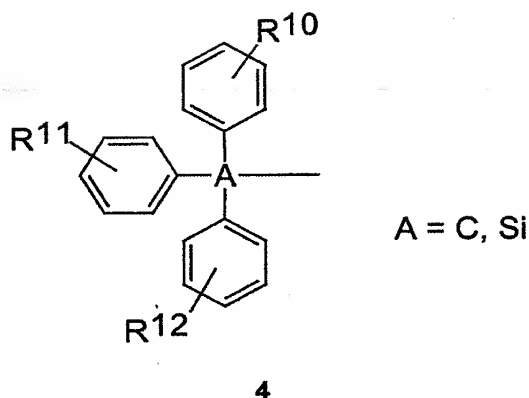
40

式中、 n は 1 から 10 までの整数であり；

R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は、同じかまたは異なり、フェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニル、トリフェニルメチルまたはトリフェニルシリルであり、

残基 R^1 から R^4 の少なくとも 1 は式 4 によるトリフェニルメチルまたはトリフェニルシリルであり、

【化 7】



10

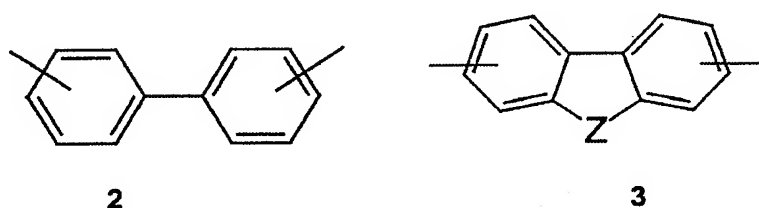
R^{10} 、 R^{11} および R^{12} は、同じかまたは異なり、H、 C_1 ないし C_6 アルキル、シクロアルキル、 C_2 ないし C_4 アルケニル、 C_1 ないし C_4 アルコキシまたはハロゲンであり、

そして R^1 から R^4 は 1 またはそれ以上の置換基で置換することができ、

A r は

【化 8】

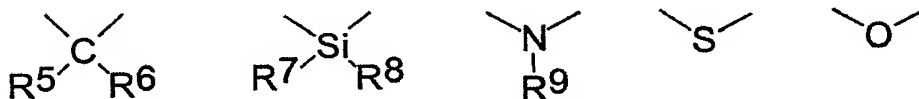
20



Z は次の構造式から選択され

【化 9】

30



R^5 から R^9 は、同じかまたは異なり、H または C_1 ないし C_5 アルキルであり、
但し、 $n = 1$ および A r がビフェニルである場合、残基 R^1 から R^9 の少なくとも 1 は上記式 1 によるトリフェニルシリル残基であり、 R^{10} から R^{12} は上記の意味を有する、
請求項 1 記載のトリアリールアミン誘導体。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は特定の空間充填翼群を用いて提供される新規のトリアリールアミン誘導体、および電子写真およびエレクトロルミネセンスデバイスにおけるホール輸送物質としての使用に関するものである。

【背景技術】

【0002】

電子写真およびエレクトロルミネセンスデバイスおよびトリアリールアミン誘導体、例えばトリアリールアミン二量体およびトリアリールアミン四量体の使用は、長い間知られて

50

いる。

最近、トリス（－８－ヒドロキシキノリノ）－アルミニウムが好適な発光物質として用いられており、この電界発光は１９６５年以来知られている。この金属キレートコンプレックスは、いくつかの場合には、クマリン、緑色のルミネセンスを用いてドーピングすることができ、使用した金属はまたベリリウムまたはガリウムである。

初期には１０ボルト以上の比較的高い通電電圧を要するが、必要な電圧はアノードと発光層との間の追加のホール輸送層を配置することによって１０ボルト以下に減らすことが出来る。

フタロシアニンおよびビフェニルオキサジアゾール誘導体は別として、使用した好適なホール移動物質は、 N, N' －ジフェニル－ N, N' －ビス（ m －トリル）－ベンジジン（TPD）および N, N' －ジフェニル－ N, N' －ジナフチ－１－イル－ベンジジン（ α －NPD）である。

それらの良好なチャージ移動特性によって、トリアリールアミン誘導体、特にトリアリールアミン二量体の、電子写真およびエレクトロルミネセンス応用における使用は長い間知られてきた。特に、 N, N' －ビス（－４'－（－ N, N' －ジフェニルアミノ－ビフェニル）－ N, N' －ジフェニル－ベンジジン（EP0650955A1）および N, N' －ビス（－４'－（－ N －フェニル－ N －ナフチ－１－イル－アミノ－ビフェニル）－ N, N' －ジフェニル－ベンジジン（JP2000260572）が、単独またはTPDまたは α －NPDを組み合わせて二重層構造で用いられる。

一般に、既知のエレクトロルミネセンスデバイスの、サービスライフおよび効率、またはその時間経過による発達は、実際の要求には合わず改良の必要性がある。使用した電荷移動物質のフィルム形成特性およびバインダー層内の形態学的安定性もまた不十分である。特に、エレクトロルミネセンスデバイスまたは配置のサービスライフ中のバインダー層内の結晶中心を形成するための前記電荷移動物質を含む層の傾向は用いた物質のガラス転移温度に大いに依存する。一般に、ガラス転移温度が高いほど、与えられた温度での再結晶傾向が小さくなり、同時にガラス転移温度よりも低い結晶速度が極端に低くなる。したがって、ガラス転移温度が高い化合物を用いて作られた配置は高い許容される実施温度をもつことが期待される。

高いガラス転移温度は空間充填の存在、立体的に必要とする基の存在によって大いに好都合である。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【０００３】

本発明の目的は電荷移動物質として適した新規の化合物を提供することであり、そのガラス転移温度は１００℃、好ましくは１５０℃から、２５０℃までであり、１００℃から約２５０℃までの範囲の温度に前記化合物を用いて製造したエレクトロルミネセンス配置の操作範囲を広げることである。

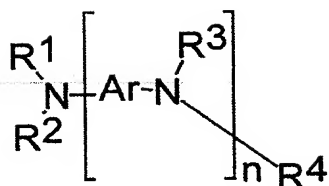
【課題を解決するための手段】

【０００４】

本発明によれば、トリアリールアミン誘導体は一般式１に相当する。

【０００５】

【化 1 0】

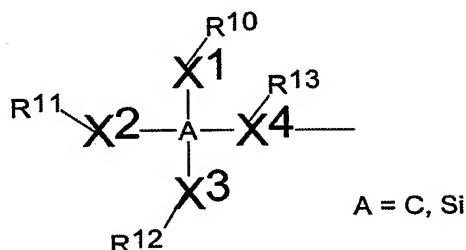


1

式中、 n は1から10までの整数であり； R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は同じかまたは異なり、フェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニル、トリアリールメチルーアリール、またはトリアリールシリルーアリール、残基の R^1 から R^4 の少なくとも1は式4で表わされるトリアリールメチルーアリールまたはトリアリールシリルーアリールであり

【0006】

【化 1 1】



4

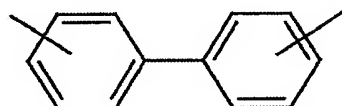
式中、芳香族または複素環芳香族化合物単位 X^1 から X^4 は同じかまたは異なり、フェニル、ナフチル、アントラセニル、フェナントレニル、ピレニル、ピリジルまたはキノリルであり、 R^{10} 、 R^{11} 、 R^{12} および R^{13} は同じかまたは異なり、 H 、 C_1 ないし C_6 アルキル、シクロアルキル、 C_2 ないし C_4 アルケニル、 C_1 ないし C_4 アルコキシ、 C_1 ないし C_4 ジアルキルアミノ、ジアリールアミノ、ハロゲン、ヒドロキシ、フェニル、ナフチルまたはピリジルであり、

そして R^1 から R^4 はフェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニルであり、1またはそれ以上の置換基 C_1 ないし C_3 アルキル、 C_1 ないし C_2 アルコキシまたはハロゲンによって置換することができ；

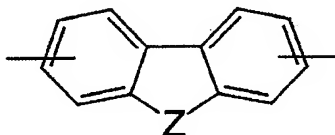
Ar は式2または3の構造式であり

【0007】

【化 1 2】



2



3

構造式 Ar は $n > 1$ ならば同じかまたは異なり、そして式3中の Z は次の構造式から選択され

【0008】

10

20

30

40

50

【化 1 3】



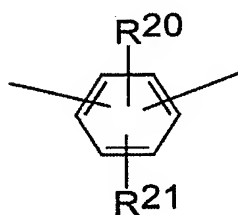
R⁵ から R⁹ は、同じかまたは異なり、H、C₁ ないし C₁₅ アルキルであり、または R⁵ および R⁶ または R⁷ および R⁸ は結合して 5 員環または 6 員環の脂環式または複素環式環を形成し、従ってそれらが結合している 5 員環と共にスピロ環系を形成し、O、N または S は複素環原子である；

10

または Ar は式 29、30、31 または 32 の構造式であり

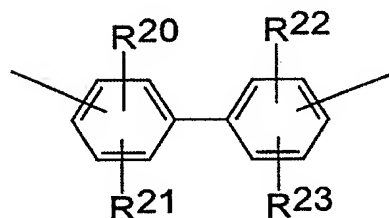
【0009】

【化 1 4】



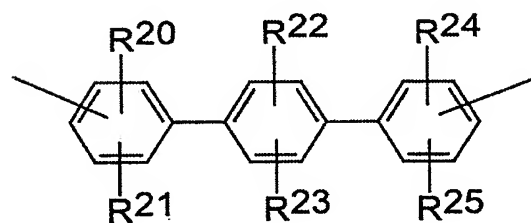
20

29



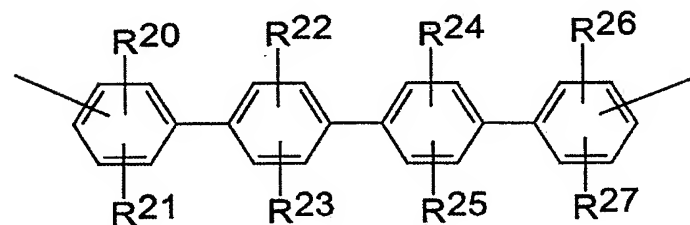
30

30



40

31



32

そして R²⁰ から R²⁷ は、同じかまたは異なり、H、フェニル、C₁ ないし C₅ アルキ

50

ル、または C_1 ないし C_3 アルコキシ、および構造式29、30、31または32は任意のフリーの置換位置での隣接した窒素原子に結合し、
但し、 $n=1$ または2および Ar がビフェニレンまたは式29から32の群の1である場合、残基の R^1 から R^4 の少なくとも1はトリアリールシリル-アリール残基または上記式4による置換されたトリアリールメチル-アリール単位であり、 R^{10} から R^{12} は上記と同じ意味をもつ。

【0010】

好ましいトリアリールアミン誘導体は式1に従うものであり、 n が1から4までの整数、特に1または2である。

式1の好ましい残基 R^1 から R^4 はフェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フルオレニル、トリアリールメチル-アリールまたはトリアリールシリル-アリールである。

好ましい残基 R^5 から R^9 は、同じかまたは異なり、メチルまたはフェニルである。

本発明の他の例では、残基 R^5 および R^6 は結合するC原子と共にスピロアルカン環を形成する。

好ましい残基 R^{20} から R^{27} は、同じかまたは異なり、水素、メチルまたはフェニルである。

構造式 Ar は式3の少なくとも1ユニットを含む場合、少なくとも1の残基 R^1 から R^4 は式4のトリアリールシリル-アリールユニットまたは置換されたトリアリールメチル-アリールユニットであることが好ましい。

全構造 Ar は式2のユニットからなり、少なくとも1の残基 R^1 から R^4 は

式4のトリアリールシリル-アリールユニットであり、または式4のトリアリールメチル-アリールユニット、但し少なくとも1の残基 R^{10} から R^{13} はHではない、

または式4のトリアリールメチル-アリールユニットであり、但し少なくとも1の残基 X^1 から X^4 は芳香族複素環物質である。

残基 R^{10} から R^{13} は好ましくはH、フェニル、 C_1 ないし C_3 アルキル、 C_1 ないし C_3 アルコキシまたはハロゲンである。

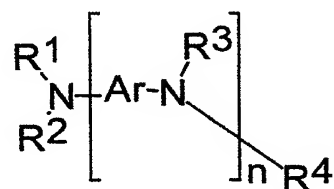
メチルまたはフェニルは特に好ましい。

ハロゲンは好ましくはFまたはClである。

本発明の好適例は一般式1のトリアリールアミン誘導体に関する。

【0011】

【化15】



1

式中、 n は1から10までの整数であり；

R^1 、 R^2 、 R^3 および R^4 は、同じかまたは異なり、フェニル、ビフェニル、メチルフェニル、ナフチル、フェナントレニル、アントラセニル、フルオレニル、トリフェニルメチルまたはトリフェニルシリルであり、残基 R^1 から R^4 の少なくとも1は式4によるトリフェニルメチルまたはトリフェニルシリルであり、

【0012】

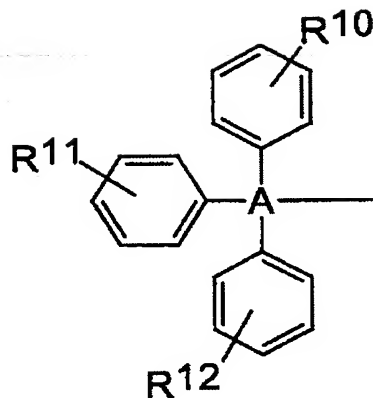
10

20

30

40

【化 1 6】



A = C, Si

10

4

R¹⁰、R¹¹ および R¹² は、同じかまたは異なり、H、C₁ ないし C₆ アルキル、シクロアルキル、C₂ ないし C₄ アルケニル、C₁ ないし C₄ アルコキシまたはハロゲンで

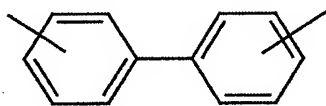
20

あり、そして R¹ から R⁴ は 1 またはそれ以上の置換基で置換することができ、

Ar は

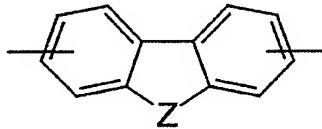
【0013】

【化 1 7】



5

or



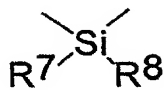
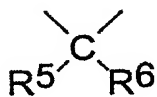
6

30

Z は次の構造式から選択され

【0014】

【化 1 8】



40

R⁵ から R⁹ は、同じかまたは異なり、H または C₁ ないし C₅ アルキルであり、但し、n = 1 および Ar が式 5 でビフェニルである場合、残基 R¹ から R⁴ の少なくとも 1 は上記式 4 によるトリフェニルシリル残基であり、R¹⁰ から R¹² は上記の意味を有する。好ましい意味での上記 Ar および R¹ から R²⁷ はこの例にも適用する。

さらに本発明は少なくとも 1 のホール輸送層および 1 の発光層を有し、少なくとも 1 のホール輸送層が式 1 のトリアリールアミン誘導体を含む、有機エレクトロルミネセンスデバイスに関するものである。

本発明の他の例では有機エレクトロルミネセンスデバイスが式 1 によるトリアリールアミ

50

ン誘導体を含むルミネセンス層からなることである。

本発明はまた有機エレクトロルミネセンスデバイスにおいてホール輸送物質またはルミネセンス物質として式1のトリアリールアミン誘導体を用いること、および電子写真配置においてホール輸送物質として式1のトリアリールアミン誘導体を用いることに関する。

一般に、電子写真デバイスは次の構造を有する：

チャージ発生層は導電性の金属層の上に配置され、可撓性物質上に適用するかまたはアルミニウムドラムからなり、チャージ発生層は照射中にチャージ輸送層に正のチャージキャリアを注入する事ができる。配置は照射前に数百ボルトまで静電的にチャージされる。チャージ発生層とチャージ輸送層は一般に15と25 μm の間の厚さであり、前記プロセスによって生じた高い電場力の影響下に、注入した正のチャージキャリア（電子「ホール」）は負にチャージしたチャージ輸送層の方へ移動し、光が落ちた領域において表面の放電をもたらす。次のステップの電子写真サイクルでは絵に従ってチャージ（または放電）された表面にトナーを塗布し、トナーを印刷物上に移動し、必要に応じて、前記物質の上に固定し、最後に過剰のトナーおよび残りのチャージを除く。

エレクトロルミネセンスデバイスは、原則として、有機化合物を含み少なくとも1が透明である2つの電極間に配置されている1またはそれ以上のチャージ輸送層からなる。電圧をかけると、金属電極（大抵はCa、MgまたはAl、銀と組合せることが多い）は、その作用は小さく、電子を注入し、反対側の電極はホールを有機層に注入し、電子とホールは結合し単一のエクシトンを形成する。後者は短く発光した後、正常位置に戻る。

電子輸送層とエレクトロルミネセンス層の追加の分離は量子効率をもたらす。同時に、エレクトロルミネセンス層は非常に薄く選択される。蛍光物質をその電子輸送挙動に関係なく置きかえることができるので、放射波長を標的方法で全可視スペクトル範囲に設置することができる。

またホール輸送層を組成の異なる2つの部分層に分けることができる。

本発明によれば、有機エレクトロルミネセンスデバイスはカソード、有機化合物を含むエレクトロルミネセンス層、およびアノードからなる層の組み合わせからなり、ホール輸送層に含まれる有機化合物は一般式1のトリアリールアミン誘導体である。

好ましい構造は次の層からなる：

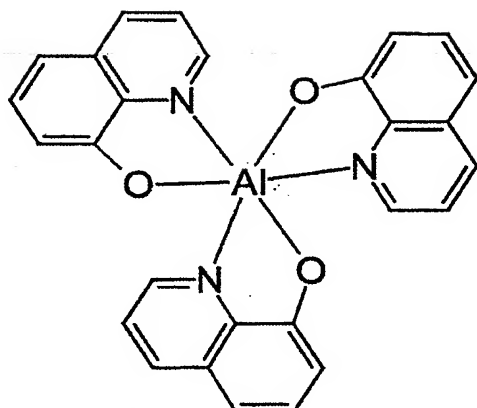
基板、透明アノード、ホール輸送層、エレクトロルミネセンス層、電子輸送層、カソード。

カソードは、Al、Mg、In、Agまたは前記金属の合金からなることができ、厚さが100ないし5000 \AA の範囲である。透明アノードは厚さが1000ないし3000 \AA の範囲のインジウム錫酸化物（ITO）からなることができ、インジウムアンチモニー錫酸化物を被覆または半透明の金属層をガラス基板に塗布する。

エレクトロルミネセンス層は、式

【0015】

【化 19】

**5**

10

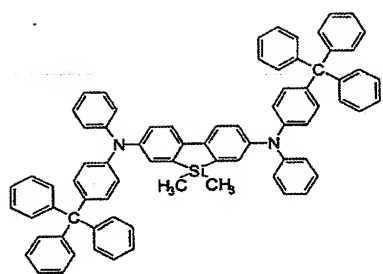
のトリス（－8－ヒドロキシキノリノ）－アルミニウムを通常のリミネセンス物質として含み、ある場合にはさらに蛍光物質、例えば置換したトリフェニルブタジエンおよび／または1, 3, 4－オキサジアゾール誘導体、ジスチルアリレン誘導体、キナクリドン、サリチリデンZnコンプレックス、DCMでドーピングしたアルミニウムキレートコンプレックス、スクアリン誘導体、9, 10－ビスシトリルアントラセン誘導体またはユーロピウムコンプレックスを含む。しかし、また本発明のみのリミネセンス化合物、または既知のリミネセンス物質との混合物を含むことができる。

20

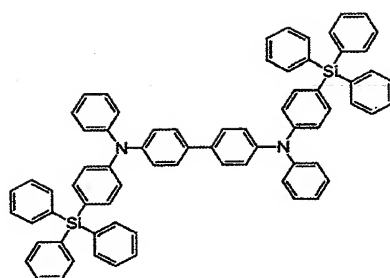
一般式1のトリアリールアミン誘導体の一般的例は：

【0016】

【化 20】

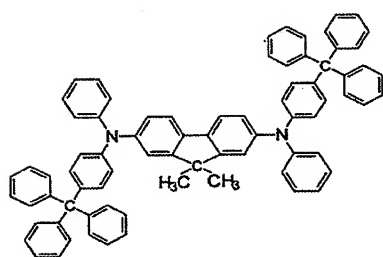


6

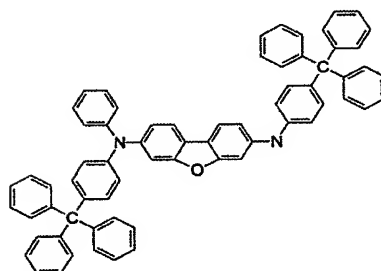


7

10

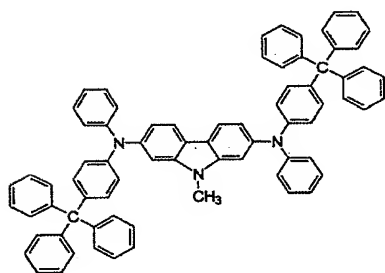


8

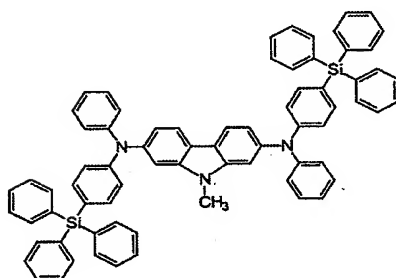


9

20



10

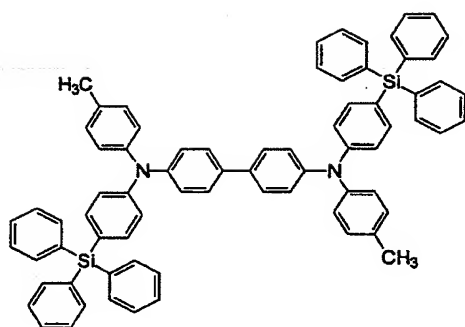


11

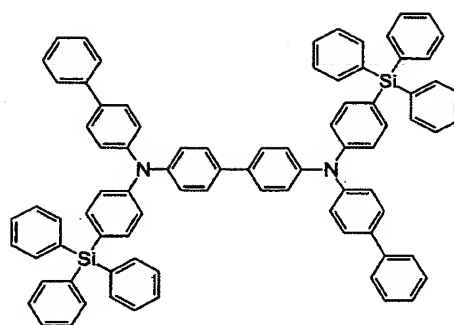
30

【 0 0 1 7 】

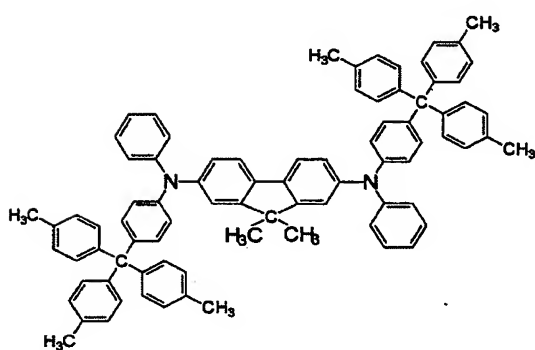
【化 2 1】



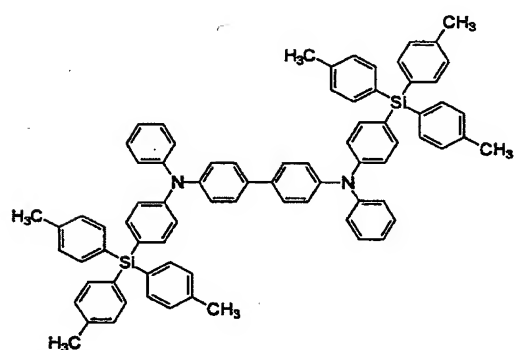
14



15



16



17

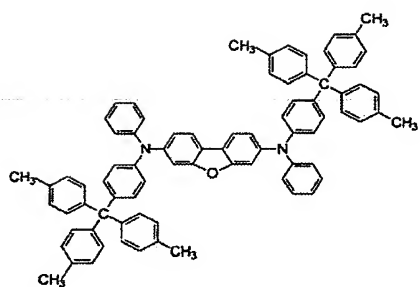
【 0 0 1 8 】

10

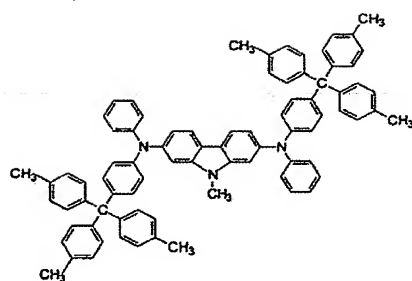
20

30

【化 2 2】

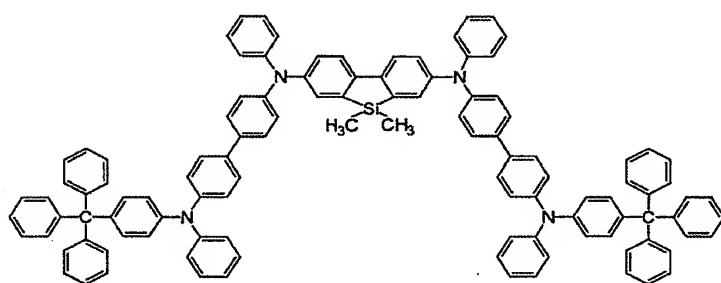


18



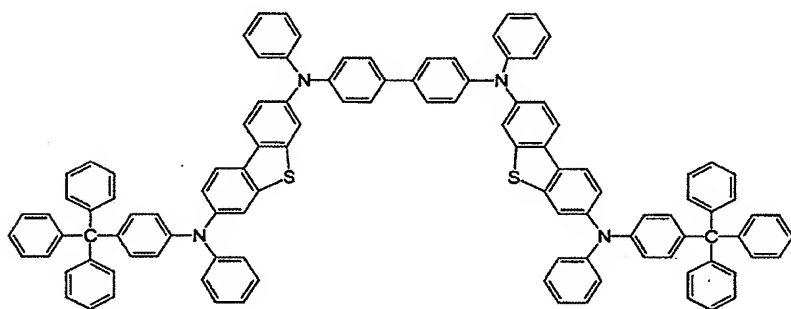
19

10



20

20

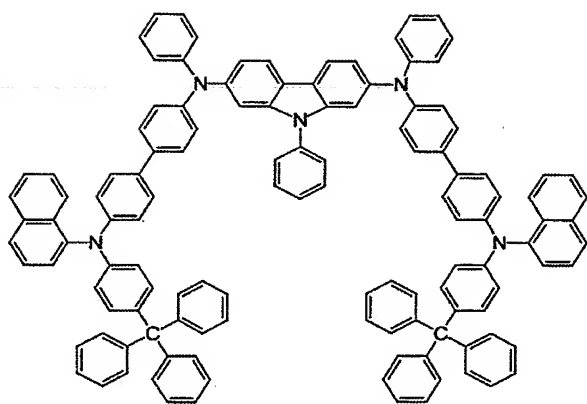


21

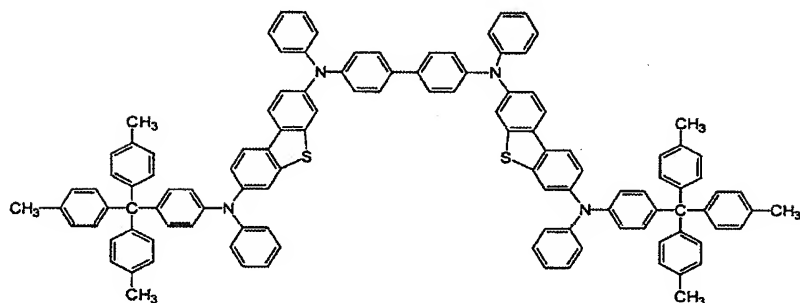
30

【 0 0 1 9 】

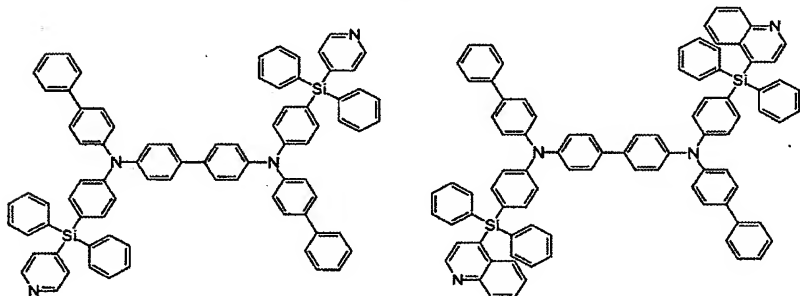
【化 2 3】



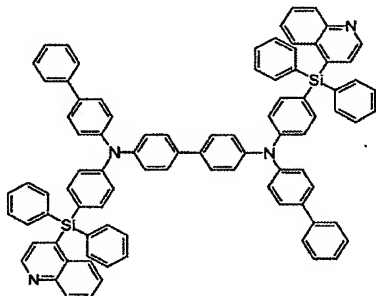
23



24



25



26

次の表 1 および 2 は式 1 の構造式ユニット Ar および残基 R^x (R¹ から R⁴) の好適例を示す。

【 0 0 2 0 】

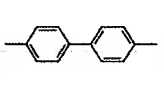
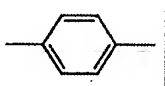
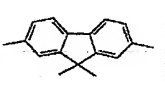
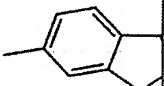
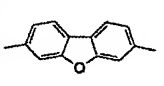
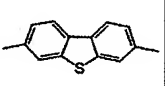
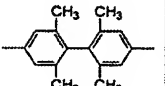
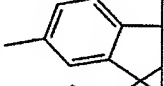
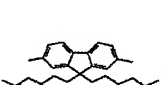
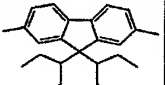
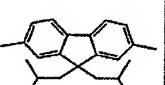
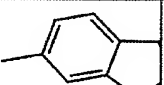
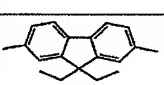
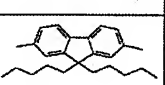
10

20

30

【表 1】

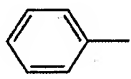
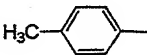
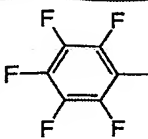
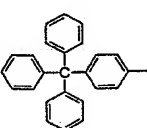
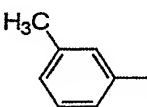
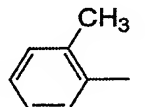
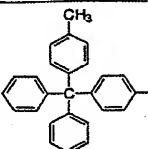
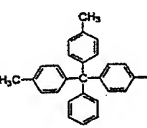
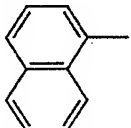
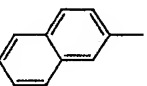
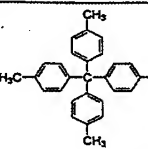
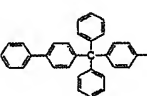
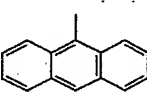
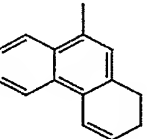
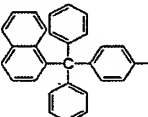
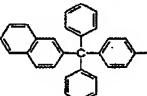
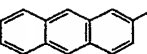
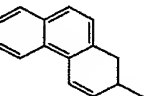
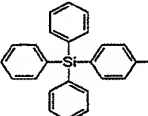
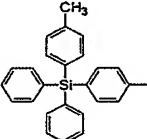
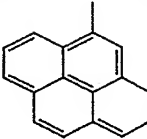
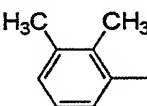
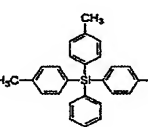
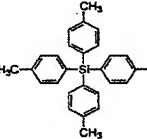
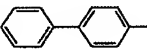
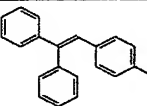
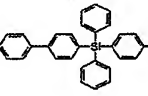
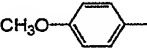
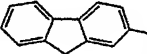
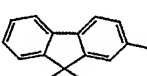
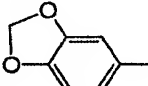
Table 1: Ar

	001		002		003		004
	005		006		007		008
	009		010		011		012
	013		014				

【 0 0 2 1 】

【表 2】

Table 2: R^{*}

	100		101		116		117
	102		103		118		119
	104		105		120		121
	106		107		122		123
	108		109		124		125
	110		111		126		127
	112		113		128		129
	114		115		130		

A r および R^{*} のための上記表にもとづき、次の表 3、表 4 および 5（表 3 の続き）、表 6、表 7（表 6 の続き）、表 8、表 9 および表 10（表 8 の続き）は異なる n 値に対する一般式 1 の好ましい特定例の化合物の組成を示す。

【 0 0 2 2 】

10

20

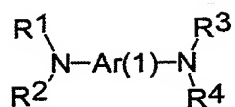
30

40

【表 3】

Table 3:

n = 1:



R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	R ⁴
100	118	001	100	118
100	119		100	119
100	120		100	120
100	121		100	121
100	122		100	122
100	123		100	123
100	124		100	124
100	125		100	125
100	126		100	126
100	127		100	127
100	128		100	128
101	120		100	100
101	121		101	121
101	122		101	122
101	123		101	123
101	124		101	124
101	125		101	125
101	126		101	126
101	127		101	127
101	128		101	128
102	123		102	123
102	124		102	124
103	120		103	120
105	120		105	120
107	121		107	121
110	119		110	119
111	124		111	124
111	128		111	128
112	118		112	118
112	119		112	119
112	120		112	120

10

20

30

40

【表 4】

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	R ⁴
112	121		112	121
112	122		112	122
112	123		112	123
112	124		112	124
112	125		112	125
112	126		112	126
112	127		112	127
112	128		112	128
113	124		113	124
115	124		115	124
124	124		124	124
129	127		129	127
129	128		129	128
100	120	002	100	120
100	124		100	124
100	128		100	128
102	124		102	124
100	117	003	100	117
100	124		100	124
100	118		100	118
101	117		102	117
101	124		101	124
103	120		103	120
103	124		103	124
112	121		112	121
100	117	004	100	117
100	124		100	124
101	117		101	117
100	117	005	100	117
100	124		100	124
101	123		101	123
101	117		101	117
103	117		103	117
103	122		103	122
100	117	006	100	117
100	124		100	124
101	123		101	123

【表 5】

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	R ⁴
101	117		101	117
103	117		103	117
103	122		103	122
100	117	007	100	117
100	121		100	121
101	123		101	123
103	118		103	118
100	117	008	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	117	009	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	124	009	100	124
100	117		100	117
102	117		102	117
102	124		102	124
100	117	010	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	117	011	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	117	012	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	117	013	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124
100	117	014	100	117
100	124		100	124
101	124		101	124

10

20

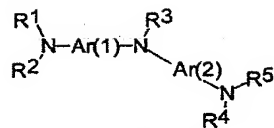
30

40

【表 6】

Table 4:

n = 2:



R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	Ar(2)	R ⁴	R ⁵
100	124	001	100	001	124	100
101	120		101		120	101
101	120		120		120	101
104	124		100		124	104
105	123		100		123	105
106	124		100		124	106
107	120		101		120	107
112	118		100		118	112
100	124	001	100	003	124	100
100	117		100		117	100
101	120		101		120	101
101	120		120		120	101
101	117		101		117	101
102	117		100		117	102
103	117		100		117	103
104	124		100		124	104
105	123		100		123	105
106	124		100		124	106
107	120		101		120	107
112	118		100		118	112
100	124	001	100	005	124	100
100	117		100		117	100
101	120		101		120	101
101	120		120		120	101
101	117		101		117	101
102	117		100		117	102
103	117		100		117	103
104	124		100		124	104
105	123		100		123	105
106	124		100		124	106
107	120		101		120	107
107	120		101		120	107

【 0 0 2 6 】

【表 7】

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	Ar(2)	R ⁴	R ⁵
112	118		100		118	112
100	124	001	100	006	124	100
100	117		100		117	100
101	120		101		120	101
101	120		120		120	101
101	117		101		117	101
102	117		100		117	102
103	117		100		117	103
104	124		100		124	104
105	123		100		123	105
106	124		100		124	106
107	120		101		120	107
112	118		100		118	112
100	117	003	100	003	117	100
101	124		100		124	101
104	124		100		124	104
100	121	007	100	007	121	100
100	124		100		124	100
103	118		100		118	103
101	121	001	100	007	121	101

10

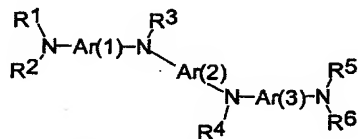
20

【 0 0 2 7 】

【表 8】

Table 5:

n=3:



30

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	Ar(2)	R ⁴	Ar(3)	R ⁵	R ⁶
100	124	001	100	001	100	001	124	100
104	124		100		100		124	104
105	124		100		100		124	105
100	117	001	100	003	100	001	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104

40

【 0 0 2 8 】

【表 9】

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	Ar(2)	R ⁴	Ar(3)	R ⁵	R ⁶
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	003	100	001	100	003	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	001	100	005	100	001	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	005	100	001	100	005	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	005	100	006	100	005	117	100
100	124		100		100		124	100
104	117		100		100		117	104
112	117		100		100		117	112
100	117	006	100	005	100	006	117	100
100	124		100		100		124	100
104	117		100		100		117	104
112	117		100		100		117	112
100	117	001	100	013	100	001	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104

【 0 0 2 9 】

10

20

30

【表 10】

R ¹	R ²	Ar(1)	R ³	Ar(2)	R ⁴	Ar(3)	R ⁵	R ⁶
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	001	100	014	100	001	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	001	100	007	100	001	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110
100	117	007	100	001	100	007	117	100
101	120		100		100		120	101
104	120		100		100		120	104
104	124		100		100		124	104
104	124		101		101		124	104
108	120		100		100		120	108
110	120		100		100		120	110

10

20

【0030】

新規化合物は既知の方法、例えばウルマン合成に従いまたは貴金属触媒を用い適当な一級および二級アミンおよび（式2および3の）ジハロゲン-ビフェニル、ジハロゲン-ジベンゾフラン、ジハロゲン-ジベンゾチオフェン、ジハロゲンカルバゾールまたはジハロゲン-ジベンゾシロール、または適当な三級ハロゲン-ビフェニル-4-イル-アミンおよび（式2または3の）ヘテロ相似性のベンジジン誘導体に基づく反応プロセスによって合成される。

30

ウルマン合成は100℃ないし300℃の範囲の温度にて触媒としてCuまたはCuプロンズを用いアリールハロゲン化物、好ましくはアリールヨウ化物が適当な物質と反応しCアリール化生成物またはNアリール化生成物を生成する縮合反応であり、また機能的に置換されたアリールハロゲン化物は敏感な基が選択的に保護されている場合に反応することができる。

互いに配置された2つのホール輸送層を使用する場合、少なくとも1の層は式1によるトリアリールアミン誘導体、好ましくは1またはそれ以上の化合物6-24を含む。

40

追加の電子輸送層を用いる場合、既知の電子輸送物質、例えばビス（-アミノフェニル）-1, 3, 4-オキサジアゾール、トリアゾールまたはジチオレン誘導体を含む。

式6から24のホール輸送層の使用は層の高い暗い伝導性、従って6ボルト以下の低いターンオン電圧をもたらし、その結果デバイスに加えられる熱ストレスが減少する。同時に、本発明により用いられるホール輸送物質は150℃以上250℃までの高いガラス転移温度をもち、従って層における再結晶はきわめて低い傾向にある。前記特性およびこれらの比較的大きい分子の化学構造によって、これら物質の生成層は非常に安定であり、通常のスピン被覆技術を使用することができるバインダーの含有の有無は問題ではない。

真空金属化によって塗布された層は構造上の欠陥スポットを含まず、可視スペクトル範囲

50

で高い透明度を有する。前記特性は新規の有機エレクトロルミネセンスデバイス生成することができ、高いルミナンス ($> 10,000 \text{ cd/m}^2$) および、同時に、かなり改良された長期安定性 ($> 10,000$ 時間) を有する。前記デバイスの実施範囲は 100 ないし 200°C 、好ましくは 120 ないし 200°C 、特に 120 ないし 150°C の温度範囲である。

次の実施例は本発明を例示するものでこれを限定するものではない。

【実施例 1】

【0031】

N, N'-ビス-(4'- (N-トリフェニルメチル)-フェニル)-N-ナフチ-1-イル-アミノ)-ビフェニル)-N, N'-ビスフェニル-2, 7-アミノ-9-フェニルカルバゾール (式 23)

還流冷却器、磁気攪拌器、温度計およびガス入口パイプを備えた 500 ml の三つ口フラスコからなるガラス装置を 120°C の温度で 2 時間加熱しガラス壁に付着した水を除く。窒素雰囲気、Na で乾燥させた 160 ml の α -キシロールを N_2 を吹き込みながら装置に供給した。6.3 mg 酢酸パラジウムおよび乾燥 α -キシロール中トリ-tert-ブチルホスフィンの 1% 溶液 5.2 ml を攪拌しながら添加し、触媒コンプレックスを生成する。

12.9 g のソジウム-tert-ブチレート、23.8 g の 2, 7-ジアニリノ-N-フェニルカルバゾールおよび 69.1 g の N-トリフェニルメチル-フェニル-N-ナフチ-1-イル-(4-ブロモビフェニル)-アミンを、生成した澄んだ黄色溶液に添加する。

窒素雰囲気を維持し、フラスコの内容物を 120°C まで攪拌しながら油浴で加熱する。NaBr は約 30 分後に沈殿を開始する。混合物を 120°C の温度で 3 時間反応させる。続いて、フラスコの中身にトルオールを添加してその容量の 2 倍まで希釈し、次いで攪拌しながら 10 倍の量のメタノールに添加する。前記工程中に、原料が沈殿し濾過によって分離される。

原料を除去するためドデカンで再結晶し、続いて DMF から再結晶する。最後に、生成物を超高真空 ($< 10^{-5}$ トル) にかける。この方法で、約 30 g の純粋な N, N'-ビス-(4'- (N-トリフェニルメチル)-フェニル)-N-ナフチ-1-イル-アミノ)-ビフェニル)-N, N'-ビスフェニル-2, 7-アミノ-9-フェニルカルバゾールを得る。測定した T_g 値は 190°C であった。

【実施例 2】

【0032】

N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(4-トリフェニル-メチル-フェニル)-アミノ-9-メチル-カルバゾール (式 10)

実施例 1 に記載したような装置に、20.35 g の 2, 7-ジアニリノ-9-メチルカルバゾールおよび 49.4 g の 4-ブロモフェニル-トリ-(4-メチルフェニル)-メタンを同じ実施例で示した方法に従い脱水塩基として 12.9 g のソジウム-tert-ブチレート、12.6 mg の酢酸パラジウムおよび触媒としてトリ-tert-ブチレートの 1% 溶液 10.4 ml を反応させる。

反応生成物の分離、処理および精製は実施例 1 と同様に行う。この方法では、約 17 g の純粋な N, N'-ジフェニルアミノ-N, N'-ビス-(4-(トリ-4-メチルフェニル)-メチル)-フェニルアミノ-9-メチル-カルバゾールが得られる。DVC 測定装置を用いて測定した T_g 値は 159°C であった。

【実施例 3】

【0033】

N, N'-ジ-(トリフェニルシリル-フェニル)-N, N'-ジフェニル-ベンジジン (式 7)

実施例 1 に記載したような装置中に、14.2 g の N, N'-ジフェニル-ベンジジンおよび 34.9 g の 4-ブロモフェニル-トリフェニル-シランを同じ実施例に示した方法

10

20

30

40

50

に従い、脱水塩基として12.9gのナトリウム-tert-ブチレート、12.6mgの酢酸パラジウムおよび触媒としてトリ-tert-ブチルホスフィンの1%溶液10.4mlを反応させる。

反応生成物は5%シリカゲルを添加したキシロールから再結晶によって精製し、そして、第二段階で、DMFからの再結晶によって精製する。この方法で、16.5gのN, N'-ジフェニル-ベンジジンが得られ、DSCを用いて測定したそのガラス転移温度は164℃である。

【実施例4】

【0034】

N-4-メチルフェニル-N-(トリフェニルメチル-フェニル)-N'-フェニル-N'-ナフチ-1-イル-p, p'-ベンジジン (式12)

10

前記実施例に記載された装置において、18.9gのプロモビフェニル-フェニル-ナフチル-アミンおよび17.9gのトリチル-メチル-ジフェニルアミンを同様の方法で、脱水塩基として12.9gのナトリウム-tert-ブチレート、12.6mgの酢酸パラジウムおよび触媒としてトリ-tert-ブチルホスフィンの1%溶液10.4mlを反応させる。

反応生成物を実施例1と同様に精製し、第一段階ではドデカンおよびキシロールを4:1の割合からなる溶媒混合物を第二段階ではDMFおよびn-ブタノール1:1の割合の混合物を用いる。

この方法で、20gのN-4-メチルフェニル-N-(トリフェニルメチル-フェニル)-N'-フェニル-N'-ナフチ-1-イル-p, p'-ベンジジンが得られる。前記化合物のガラス転移温度は151℃である。

20

【実施例5】

【0035】

N, N'-ビス-(7-(N-(4-トリフェニルメチル-フェニル)-N-フェニル-アミノ)-ジベンゾチオフェン-2-イル)-N, N'-ジフェニル-ベンジジン (式21)

前記装置で、36.1gのN, N'-ビス-(7-ブロモ-ジベンゾチオフェン-2-イル)-N, N'-ジフェニル-ベンジジンを34.6gのN-トリチルフェニル-N-フェニルアミンと反応させる。実施例1に示した化合物は触媒として同様の量で用いる。生成物は7時間反応後メタノールを用いて沈殿させる。

30

粗生成物はキシロールから再結晶しDMFから3回再結晶させて精製する。

この方法で22gのN, N'-ビス-(7-(N-(4-トリフェニルメチル-フェニル)-N-フェニル-アミノ)-ジベンゾチオフェン-2-イル)-N, N'-ジフェニル-ベンジジンが得られ、そのガラス転移温度は186℃である。

【実施例6】

【0036】

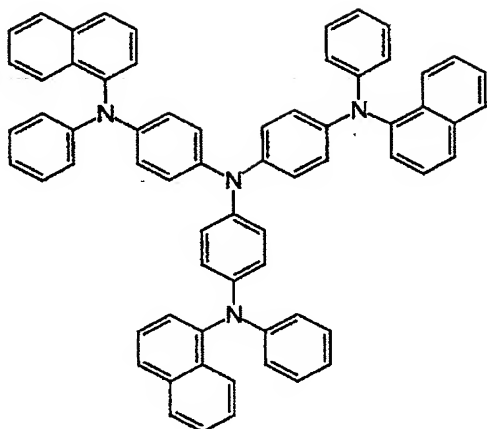
エレクトロルミネセンス配置

超高真空 (10^{-8} hPa) 下に、インジウム酸化錫電極 (ITO) を用いてコーティングしたガラス基板に塗布する。前記コーティングは既知の星形化合物25

40

【0037】

【化 2 4】



10

からなる 55 nm 厚さのホール輸送層、実施例 1 に従い得られた N, N'-ビス-(4'-
-(N-トリフェニルメチル)-フェニル)-N-ナフチ-1-イル-アミノ)-ビフェ
ニル-2, 7-アミノ-N-フェニルカルバゾールからなる 5 nm 厚さの放射層、および AlQ₃ キレートコンプレックスからなる 30 nm 厚さ
の電子輸送層からなる。これらの層は約 0.1 nm/s の成長速度で沈積される。続いて
、90 nm 厚さのアルミニウムカソードを前記構造に塗布する。

20

エレクトロルミネセンス曲線を決定するために ITO 電極とアルミニウムカソードとの間
に電圧をかける。発光率はガラス基板の直下に配置する大面積の Si フォトダイオードを
用いて測定する。

次の結果が得られた。

ターンオン電圧 (1 cd/m ²)	2.8 ボルト
最大輝度 (15 V)	31,200 cd/m ²
測光率 (100 cd/m ²)	2.40 cd/A
発光率 (100 cd/m ²)	1.20 cd/W
抽出量子効率	0.52 %

30

【実施例 7】

【0038】

エレクトロルミネセンス配置

実施例 2 による N, N'-ジフェニル-N, N'-ビス-(4-トリフェニルメチル-
フェニル)-アミノ-9-メチルカルバゾールを放射層に用いた以外は実施例 6 と同様
の配置の層を生成する。

次の結果が得られた。

ターンオン電圧 (1 cd/m ²)	2.9 ボルト
最大輝度 (15 V)	24,100 cd/m ²
測光率 (100 cd/m ²)	2.15 cd/A
発光率 (100 cd/m ²)	1.28 cd/W
抽出量子効率	0.39 %

40

上記実施例は本発明に従い生成した物質が 150 °C 以上のガラス転移温度をもつことを示
している。さらに、前記物質は使用した生成物のアモルファス層において再結晶する傾向
が極めて低いことを示した。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/DE 02/04758A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 7 C07C211/54 C07C211/61 H05B33/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 7 C07C H05B

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the International search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 01 56091 A (KANITZ ANDREAS ;NUYKEN OSKAR (DE); SIEMENS AG (DE); MIELKE GEORG F) 2 August 2001 (2001-08-02) Seite 8, Verbindung TritTPD, Seite 19, Zeile 3 - Seite 20, Zeile 16 claims 1,2,7	1-3,6-11
A	US 6 251 531 B1 (ENOKIDA TOSHIO ET AL) 26 June 2001 (2001-06-26) Tabelle 1, Eintrag (26) claim 1	1-11

☐ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- *A* document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- *E* earlier document but published on or after the international filing date
- *L* document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- *O* document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- *P* document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- *T* later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- *X* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- *Y* document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
- *B* document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

23 May 2003

Date of mailing of the international search report

03/06/2003

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Kleidernigg, O

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 02/04758

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
WO 0156091	A	02-08-2001	WO 0156091 A2	02-08-2001
US 6251531	B1	26-06-2001	DE 69625018 D1	09-01-2003
			DE 69625018 T2	10-04-2003
			EP 1146034 A1	17-10-2001
			EP 0765106 A2	26-03-1997
			JP 3340687 B2	05-11-2002
			JP 11265788 A	28-09-1999
			JP 2924809 B2	26-07-1999
			JP 10072579 A	17-03-1998
			JP 2924810 B2	26-07-1999
			JP 10072580 A	17-03-1998
			JP 10072581 A	17-03-1998
			KR 204220 B1	15-06-1999
			US 5759444 A	02-06-1998

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/04758

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C07C211/54 C07C211/61 H05B33/00		
Nach der internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE		
Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK 7 C07C H05B		
Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, WPI Data, PAJ, BEILSTEIN Data, CHEM ABS Data		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	WO 01 56091 A (KANITZ ANDREAS ;NUYKEN OSKAR (DE); SIEMENS AG (DE); MIELKE GEORG F) 2. August 2001 (2001-08-02) Seite 8, Verbindung TritTPD, Seite 19, Zeile 3 - Seite 20, Zeile 16 Ansprüche 1,2,7	1-3,6-11
A	US 6 251 531 B1 (ENOKIDA TOSHIO ET AL) 26. Juni 2001 (2001-06-26) Tabelle 1, Eintrag (26) Anspruch 1	1-11
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" Älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist "T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist "X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindeterischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden "Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindeterischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche		Absendedatum des internationalen Recherchenberichts
23. Mai 2003		03/06/2003
Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5618 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Beauftragter Kleidermigg, O

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 02/04758

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument			Datum der Veröffentlichung		Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0156091	A	02-08-2001	WO	0156091 A2		02-08-2001
US 6251531	B1	26-06-2001	DE	69625018 D1		09-01-2003
			DE	69625018 T2		10-04-2003
			EP	1146034 A1		17-10-2001
			EP	0765106 A2		26-03-1997
			JP	3340687 B2		05-11-2002
			JP	11265788 A		28-09-1999
			JP	2924809 B2		26-07-1999
			JP	10072579 A		17-03-1998
			JP	2924810 B2		26-07-1999
			JP	10072580 A		17-03-1998
			JP	10072581 A		17-03-1998
			KR	204220 B1		15-06-1999
			US	5759444 A		02-06-1998

フロントページの続き

(51) Int. Cl.⁷

G 0 3 G 5/06
H 0 5 B 33/14
H 0 5 B 33/22

F I

C 0 9 K 11/06 6 3 5
C 0 9 K 11/06 6 4 5
C 0 9 K 11/06 6 6 0
C 0 9 K 11/06 6 9 0
G 0 3 G 5/06 3 1 2
H 0 5 B 33/14 B
H 0 5 B 33/22 D

テーマコード (参考)

(81) 指定国 AP (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SI, SK, TR), OA (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW

F ターム (参考) 2H068 AA20 BA12

3K007 AB14 DB03 FA01
4C204 BB09 CB25 DB01 EB01 FB01 GB32
4H006 AA01 AA03 AB91
4H049 VN01 VP02 VQ35 VR24 VU25

【要約の続き】

